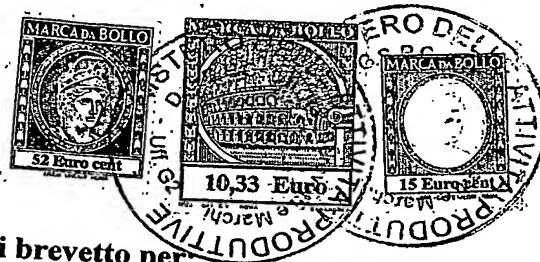


**PRIORITY
DOCUMENT**SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

• EP 04/14420

REC'D 19 JAN 2005

WIPO PCT

*Ministero delle Attività Produttive**Direzione Generale per lo Sviluppo Produttivo e la Competitività**Ufficio Italiano Brevetti e Marchi**Ufficio G2*

Autenticazione di copia di documenti relativi alla domanda di brevetto per:
INVENZIONE INDUSTRIALE N. MI 2003 A 002531.

Si dichiara che l'unita copia è conforme ai documenti originali
depositati con la domanda di brevetto sopra specificata, i cui dati
risultano dall'accluso processo verbale di deposito.

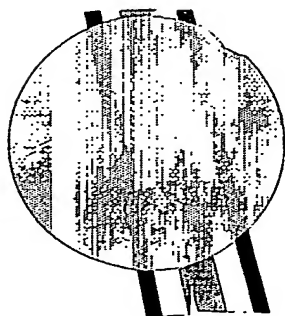
Inoltre istanza di correzione (pag.2) depositata presso CCIAA di
Milano in data 22.07.2004, prot. n. MI-V 002202.

22 NOV. 2004

Roma, li.....

IL FUNZIONARIO

Giampietro Carlotta



AL MINISTERO DELLE ATTIVITÀ PRODUTTIVE

UFFICIO ITALIANO BREVETTI E MARCHI - ROMA

DOMANDA DI BREVETTO PER INVENZIONE INDUSTRIALE, DEPOSITO RISERVE, ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO

MODUL



A. RICHIEDENTE (I)

1) Denominazione NUVERA FUEL CELLS EUROPE S.r.l. N.G. SR
 Residenza MILANO codice 129 102 901 52
 2) Denominazione _____
 Residenza _____ codice _____

B. RAPPRESENTANTE DEL RICHIEDENTE PRESSO L'U.I.B.M.

cognome nome _____ cod. fiscale _____
 denominazione studio di appartenenza _____
 via _____ n. _____ città _____ cap _____ (prov) _____

C. DOMICILIO ELETTIVO destinatario come sopra

via Bistolfi n. 35 città MILANO cap 20134 (prov) MI

D. TITOLO

classe proposta (sez/cl/sci) _____ gruppo/sottogruppo _____

CELLA A COMBUSTIBILE A MEMBRANA ALIMENTATA IN CONTROCORRENTE CON ARIA NON
UMIDIFICATA

ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO:

SI ☐ NO ☒

SE ISTANZA: DATA _____ N° PROTOCOLLO _____

E. INVENTORI DESIGNATI

cognome nome

1) Giuseppe FAITA 3) Luca MERLO
 2) Antonino TORO 4) _____

F. PRIORITÀ

nazione o organizzazione _____ tipo di priorità _____ numero di domanda _____ data di deposito _____

1) _____
 2) _____

G. CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA CULTURE DI MICROORGANISMI, denominazione

H. ANNOTAZIONI SPECIALI

Il rappresentante pur informato del contenuto
 della circolare n. 423 del 01/03/2001 effettua
 il deposito con riserva di lettera di incarico.

DOCUMENTAZIONE ALLEGATA

N. es.

Doc. 1) ☒ PROV n. pag. 24 riassunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (obbligatorio 1 esemplare)
 Doc. 2) ☒ PROV n. tav. 6 disegno (obbligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare)
 Doc. 3) ☐ RIS lettera d'incarico, procura o riferimento procura generale
 Doc. 4) ☐ RIS designazione inventore
 Doc. 5) ☐ RIS documenti di priorità con traduzione in italiano
 Doc. 6) ☐ RIS autorizzazione o atto di cessione
 Doc. 7) ☐ nominativo completo del richiedente

8) attestati di versamento, totale Euro 291,80

COMPILATO IL 18/07/2003

FIRMA DEL(I) RICHIEDENTE(I)

Michele Tettamanti, Direttore Generale

CONTINUA SI/NO ☐

DEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI/NO ☒

SCIoglimento RISERVE

Data _____ N° Protocollo _____

confronta singole priorità

CAMERA DI COMMERCIO IND. ART. E AGR. DI MILANO

MILANO

codice 15

VERBALE DI DEPOSITO

NUMERO DI DOMANDA

MI2003A 002531

Reg. A.

L'anno

DUEMILATRE

il giorno

DI DICIANNOVE

del mese di

DICEMBRE

Il(i) richiedente(i) sopraindicato(i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredata da _____
 _____ fogli aggiuntivi per la concessione del brevetto sopraindicato.

I. ANNOTAZIONI VARIE DELL'UFFICIALE ROGANTE

IL DEPOSITANTE

L'UFFICIALE ROGANTE

M. CORTONESI

RIASSUNTO INVENZIONE CON DISEGNO PRINCIPALE, DESCRIZIONE E RIVENDICAZIONE

NUMERO DOMANDA

11.200371002531

REG. A

DATA DI DEPOSITO

19/12/2003

NUMERO BREVETTO

DATA DI RILASCIO

11/11/1111

D. TITOLO

CELLA A COMBUSTIBILE A MEMBRANA ALIMENTATA IN CONTROCORRENTE CON ARIA NON UMIDIFICATA

L. RIASSUNTO

La presente invenzione descrive una cella a combustibile a membrana caratterizzata dal fatto di funzionare stabilmente anche ad elevate densità di corrente pur essendo alimentata con gas non umidificati, ad esempio aria non umidificata, in particolare a pressione prossima a quella atmosferica. Questo risultato viene ottenuto utilizzando distributori interni di gas del tipo costituito da elementi planari porosi, quali materiali reticolati tridimensionali, materiali sinterizzati, reti o lamiere espanse sovrapposte, e contemporaneamente alimentando i gas di reazione in controcorrente, con preferenza per l'alimentazione dal basso di aria con il solo contenuto di umidità ambientale. In una alternativa preferita viene iniettata acqua liquida dal basso sul lato di alimentazione dell'aria: con queste condizioni di esercizio si ottiene un funzionamento stabile estremamente semplificato, poiché le portate dell'aria e dell'acqua iniettata, regolate come richiesto per la massima erogazione elettrica nominale, sono mantenute invariate anche in condizioni di bassa o nulla erogazione senza che la membrana della cella subisca disidratazione.

M. DISEGNO

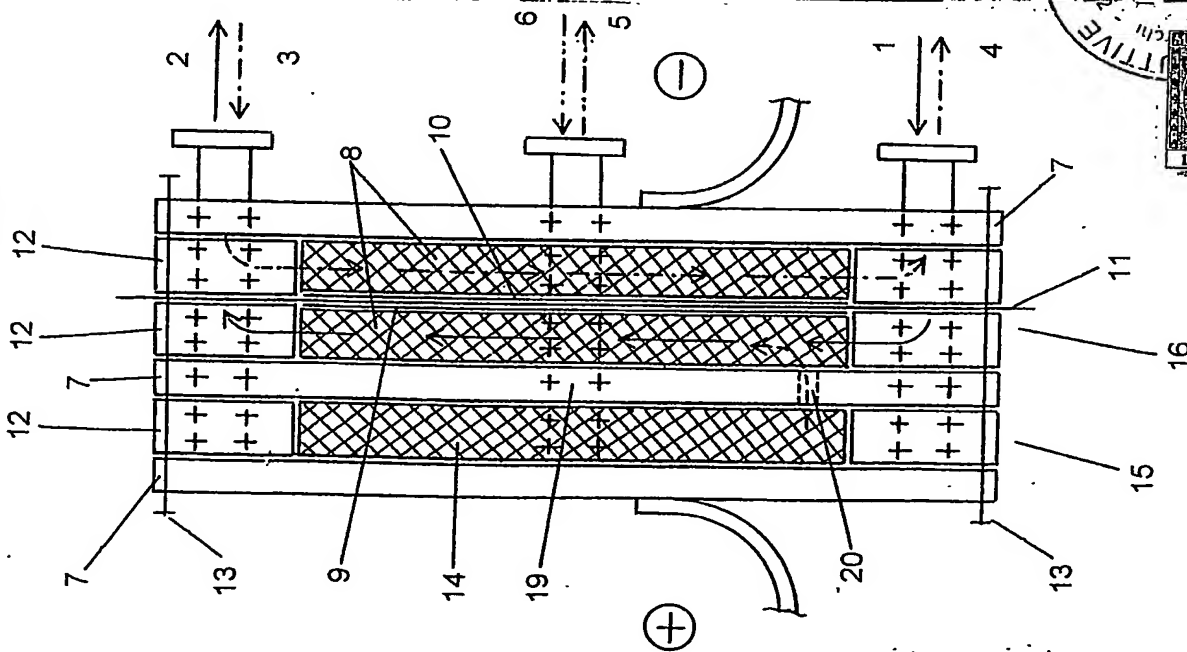
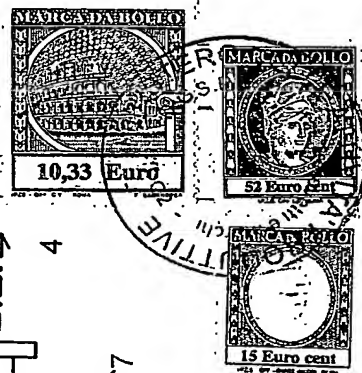
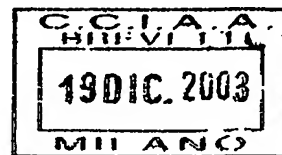


FIG. 7

mm



MI 2003 A 0 0 2 5 3 1

DESCRIZIONE DI INVENZIONE INDUSTRIALE

A NOME: NUVERA FUEL CELLS EUROPE S.r.l.

Le celle a combustibile sono caratterizzate dalla capacità di convertire direttamente in energia elettrica l'energia chimica di un combustibile, ad esempio idrogeno puro o gas contenente idrogeno, senza il passaggio attraverso uno stadio di combustione. L'assenza di questo passaggio consente alle celle a combustibile di sottrarsi ai vincoli del noto principio di Carnot e di avere pertanto un rendimento energetico intrinsecamente più elevato di quello dei convenzionali generatori.

Fra i vari tipi di celle a combustibile note quello a membrana si presenta come un dispositivo allo stato solido con struttura interna particolarmente semplificata e con una notevole capacità sia di fornire le potenze nominali in tempi molto ristretti partendo da condizioni di erogazione nulla, sia di rispondere a richieste anche rapide di energia elettrica. Questo insieme di caratteristiche rende la cella a combustibile a membrana molto attraente per impieghi nel campo automobilistico e nel campo stazionario per applicazioni di piccola potenza, come è il caso commercialmente molto interessante dei sistemi destinati ad essere installati in abitazioni private, hotel, ripetitori per telecomunicazioni, nonché in centri di calcolo e ospedali come unità di emergenza.

A fronte delle caratteristiche positive la cella a combustibile a membrana presenta però anche inconvenienti: fra questi ha particolare rilievo la necessità di dover mantenere nello stato di piena idratazione la membrana polimerica a conduzione di protoni, la cui conducibilità è appunto una funzione del contenuto di acqua.

La membrana deve essere inerte nei confronti dell'azione fortemente aggressiva di composti perossidici e radicalici che si formano come prodotti intermedi di



reazione e per questa ragione i tipi attualmente reperibili commercialmente sono costituiti da polimeri perfluorurati. Sulle catene polimeriche sono inseriti gruppi solfonici $-SO_3H$, che devono essere dissociati: la carica elettrica libera risultante determina infatti un particolare orientamento spaziale delle catene polimeriche con formazione di canali reticolari lungo i quali avviene appunto la migrazione ionica. La dissociazione, che è quindi un passaggio obbligato per la formazione dei canali, avviene solo quando la membrana contiene certe quantità di acqua, cioè quando la membrana è caratterizzata da un opportuno grado di idratazione. Il contenuto di acqua della membrana è il risultato di un delicato equilibrio fra acqua formata nel funzionamento e acqua asportata dai gas che fluiscono attraverso la cella a combustibile. L'asportazione di acqua può diventare pericolosamente elevata quando la cella a combustibile è esercita a pressioni moderate come è richiesto per minimizzare i consumi parassiti di energia che influiscono negativamente sull'efficienza globale del sistema. Con pressioni di funzionamento moderate, in particolare prossime a quella atmosferica, le portate volumetriche dei gas risultano elevate: sul lato aria, poi, la situazione è particolarmente critica, poiché per mantenere una sufficiente pressione parziale di ossigeno anche nelle regioni della cella prossime allo scarico l'aria viene alimentata in quantità sostanzialmente maggiore, tipicamente doppia, del valore richiesto teoricamente. Per diminuire l'asportazione di acqua in modo da conservare la necessaria idratazione della membrana la tecnologia nota descrive vari dispositivi diretti a saturare i gas di alimentazione, e in modo speciale l'aria, con vapore d'acqua a temperature prossime a quelle di funzionamento della cella a combustibile. La saturazione dell'aria è perseguibile nel modo più semplice facendo gorgogliare l'aria in opportuni saturatori esterni costituiti da recipienti contenenti acqua

demineralizzata mantenuta alla temperatura desiderata mediante scambio termico, ad esempio con l'acqua di raffreddamento della cella a combustibile: tuttavia, dovendo mantenere le superfici di scambio termico entro limiti ragionevoli, la temperatura media del saturatore risulta inferiore a quella della cella e pertanto l'aria ha ancora una potenziale capacità di disidratare la membrana che si manifesta in particolare in condizioni di erogazione spinta. Una modifica del dispositivo, descritta nella domanda di brevetto DE 103 04 657, prevede che l'acqua in fase liquida trascinata dall'aria esausta e scaricata dalla cella a combustibile venga separata e raccolta in un recipiente integrato con la cella stessa: in questo modo si realizza sia una semplificazione del sistema complessivo poiché il saturatore esterno viene eliminato sia un più elevato livello termico per l'evaporazione dell'acqua grazie al migliore scambio termico. Anche con questa soluzione, tuttavia, la temperatura di saturazione, pur se innalzata, rimane inferiore a quella di funzionamento della cella a combustibile. Per completare la saturazione dell'aria di alimentazione con vapore d'acqua sarebbe quindi necessario ricorrere a fonti aggiuntive di energia termica con un conseguente abbassamento del rendimento energetico del sistema complessivo: un procedimento di questo tipo è rivendicato in US 6,350,535, in cui l'aria di alimentazione è addizionata con acqua liquida nebulizzata e la miscela così ottenuta è fatta transitare attraverso uno scambiatore di calore in cui viene fornita l'energia termica necessaria per evaporare l'acqua. Questi dispositivi richiedono in ogni caso strumentazione di controllo del livello, pompe di alimentazione dell'acqua, controllo di portata dello spurgo per prevenire l'accumulo di impurezze inevitabilmente presenti sia pure in tracce nell'acqua da evaporare, il tutto con costi aggiuntivi non trascurabili. In US 6,066,408 è descritto un metodo di

Mur

umidificazione comprendente celle di umidificazione intercalate alle celle a combustibile di uno stack: in questo modo le celle di umidificazione funzionano in pratica come celle di raffreddamento dove il raffreddamento è assicurato dall'evaporazione dell'acqua necessaria per saturare l'aria che è fatta fluire attraverso di esse. La temperatura di umidificazione risulta superiore a quella vista con i saturatori esterni prima discussi, anche se comunque inferiore a quella delle celle a combustibile poiché una certa differenza di temperatura è pur sempre richiesta per mantenere una adeguata velocità di scambio del calore. Questo dispositivo, tuttavia, è assai poco efficace in fase di avviamento e durante i periodi di bassa erogazione di potenza quando la temperatura delle celle è significativamente inferiore a quella di funzionamento a regime.

In US 2001/0015501 viene descritto l'uso di un'unità definita correntemente come unità entalpica. Questa unità è costituita da un recipiente diviso in due compartimenti da una membrana selettivamente permeabile all'acqua: i due compartimenti sono alimentati rispettivamente con l'aria a temperatura ambiente da avviare allo stack e con l'aria esausta calda satura di vapore d'acqua in uscita dalle celle. Attraverso la membrana avviene uno scambio di calore e di acqua dall'aria esausta all'aria di alimentazione, che in così si riscalda e si umidifica: anche in questo caso, tuttavia, la temperatura finale dell'aria di alimentazione è certamente inferiore alla temperatura di funzionamento delle celle a combustibile. Un dispositivo simile è descritto in DE 199 18 849 dove il trasferimento di acqua e di calore non avviene attraverso una membrana selettiva, ma piuttosto utilizzando un tamburo rotante suddiviso in settori le cui pareti interne sono provviste di un film di materiale igroscopico, ad esempio un sale di litio. La rotazione del tamburo mette successivamente in comunicazione ogni settore prima con l'aria esausta





che trasferisce il contenuto di acqua al materiale igroscopico e il calore alla struttura di supporto e quindi con l'aria di alimentazione a bassa umidità che si riscalda ed estrae l'acqua dal materiale igroscopico. Naturalmente anche questo dispositivo soffre delle limitazioni accennate precedentemente.

In US 5,441,821 è proposto di assicurare un certo livello di umidificazione e di temperatura tramite il riciclo dell'aria esausta sul ventilatore o compressore dell'aria di alimentazione: in questo caso, immaginando che l'aria esausta sia satura di vapore d'acqua, l'umidità risultante della corrente d'aria totale è una funzione del rapporto fra le portate del riciclo e dell'aria aspirata dall'ambiente (aria "fresca"). Poiché questo rapporto non può essere molto grande per contenere entro limiti ragionevoli le dimensioni dei ventilatori o compressori e il relativo consumo di energia, il contenuto di umidità dell'aria totale è nuovamente insoddisfacente. Inoltre il riciclo dell'aria esausta impoverita di ossigeno comporta che la pressione parziale media dell'ossigeno all'interno delle celle a combustibile sia minore di quella che caratterizza il funzionamento senza riciclo. Ciò può comportare una certa diminuzione di prestazioni.

Per ovviare agli inconvenienti finora visti e per centrare l'obiettivo di assicurare una sicura e completa idratazione delle membrane US 6,406,807 descrive l'iniezione di acqua direttamente all'interno delle celle a combustibile: l'evaporazione sottrae efficacemente il calore generato dal funzionamento e contemporaneamente genera la pressione parziale di vapore necessario per il mantenimento di una corretta idratazione delle membrane. Il metodo presenta una certa criticità in considerazione del fatto che le quantità di acqua vanno calibrate in funzione dell'erogazione di potenza per evitare i due rischi limite di perdita di idratazione (iniezione di quantità insufficienti di acqua) e di allagamento degli



elettrodi porosi (iniezione di quantità eccessive di acqua).

Un ulteriore modo di affrontare il problema della disidratazione delle membrane è discusso in US 2002/0068214: oltre all'umidificazione effettuata con uno dei processi sopra descritti il catodo della cella a combustibile a membrana è dotato di ridotta porosità nella regione dell'entrata dell'aria, che l'esperienza ha dimostrato essere la più esposta ai rischi di evaporazione eccessiva di acqua. In questo modo l'asportazione dell'acqua come vapore o anche come liquido risulta ostacolata tanto più quanto minore è la porosità residua con migliore conservazione dell'idratazione della membrana. Questo procedimento comporta due seri inconvenienti legati uno alla contemporanea diminuzione della velocità di diffusione dell'ossigeno cui si accompagna una caduta delle prestazioni, l'altro alla struttura più complessa degli elettrodi che male si accorda con le esigenze di produzione su larga scala a basso costo.

I tipi visti di condizionamento dell'aria di alimentazione, a causa delle intrinseche limitazioni, sono accettabili solo nel caso di funzionamento sotto elevata pressione, tipicamente da 3 a 4 bar, dove l'aria di alimentazione ha portata volumetrica sostanzialmente ridotta e può avere una temperatura superiore a quella ambiente per effetto della compressione, mentre sono discutibili e relativamente poco affidabili per il funzionamento a pressione inferiore a 3 bar, in particolare al di sotto di 2.5 bar.

Lo scopo della presente invenzione è di superare le limitazioni connesse alla necessità di preumidificare l'aria di alimentazione come indicato nella tecnologia nota e di assicurare il funzionamento stabile di una cella a combustibile a membrana o di una molteplicità di celle a combustibile a membrana organizzate in un blocco, noto come stack, in condizioni di alimentazione con aria non umidificata



e a pressione moderata, tipicamente inferiore a 3 bar.

In un primo aspetto dell'invenzione la cella a combustibile a membrana è equipaggiata con piatti bipolari, distributori interni di flusso dei gas di alimentazione, catodo e anodo catalitici, membrana a conduzione di protoni e dispositivo di raffreddamento posizionati verticalmente, dove detti distributori interni sono costituiti da elementi planari porosi eventualmente dotati di deformabilità e elasticità residua, come materiali reticolati tridimensionalmente, materiali sinterizzati, reti o lamiere espanse sovrapposte, dove detti gas di alimentazione con portata regolata rispetto alla corrente elettrica erogata sono aria non preumidificata introdotta nella parte inferiore della cella e idrogeno secco o gas contenente idrogeno eventualmente saturi di vapore d'acqua introdotti nella parte superiore della cella (flussi noti nella tecnica come flussi controcorrente), dove la pressione dell'aria scaricata è inferiore a 3 bar, in particolare inferiore a 2.5 bar e ancora più in particolare è prossima alla pressione atmosferica, e in quest'ultimo caso la variazione di pressione dell'aria attraverso il relativo distributore di flusso è inferiore a 1 bar e tipicamente uguale a 0.5 bar nelle condizioni di funzionamento corrispondenti alla massima erogazione nominale di corrente.

In un secondo aspetto dell'invenzione l'alimentazione dell'aria è effettuata a pressione inferiore a 3 bar, la variazione di pressione attraverso il relativo distributore di flusso è trascurabile e la temperatura dell'aria scaricata dalla cella è mantenuta prossima ma al di sotto della temperatura di rugiada corrispondente alla pressione parziale del vapore d'acqua che è funzione del rapporto fra moli di acqua di reazione e moli totali scaricate di aria e di vapore.

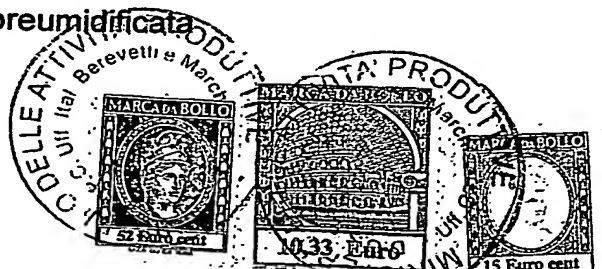
In un terzo aspetto dell'invenzione acqua liquida è iniettata nella parte inferiore

Mr

della cella (in corrispondenza dell'alimentazione dell'aria a pressione inferiore a 3 bar) con una portata regolata rispetto alla intensità della corrente elettrica erogata. In un quarto aspetto dell'invenzione acqua liquida è iniettata nella parte inferiore della cella e le portate dell'aria alimentata a pressione inferiore a 3 bar e dell'acqua iniettata, regolate al valore richiesto per la massima erogazione nominale, sono mantenute costanti al variare della corrente elettrica.

Questi aspetti unitamente ad altre caratteristiche del dispositivo dell'invenzione e del suo funzionamento sono chiariti nella seguente descrizione dettagliata dell'invenzione, facendo riferimento alle seguenti figure:

- figura 1, in cui è schematizzata una sezione trasversale della cella a combustibile a membrana secondo l'invenzione completa dell'indicazione delle direzioni dei flussi dei gas di alimentazione
- figura 2, in cui è mostrata in dettaglio una realizzazione del distributore interno del flusso di gas di alimentazione costituita da materiale reticolato tridimensionale
- figura 3, in cui è rappresentata una sezione trasversale di una realizzazione di cella a combustibile a membrana secondo la tecnica nota
- figura 4, in cui è mostrato come una molteplicità di celle a combustibile a membrana secondo l'invenzione possono essere assiate a costituire un blocco, noto ai tecnici del campo come stack, in grado di fornire corrente elettrica con tensioni elevate come normalmente richiesto dagli apparecchi utilizzatori
- figura 5, in cui è riportato il grafico che rappresenta il ciclo di funzionamento utilizzato per l'esercizio di uno stack di 15 celle a combustibile a membrana alimentato con aria non preumidificata






- figura 6, in cui è mostrato come la tensione dello stack di figura 5, misurata nei periodi di densità di corrente uguale a 2000 A/m^2 , si mantenga costante nel tempo
- figura 7, in cui è schematizzata la sezione trasversale della cella a combustibile a membrana secondo l'invenzione con iniezione di acqua nella parte inferiore sul lato dell'aria di alimentazione.

Durante il funzionamento di una cella a combustibile, singola o come molteplicità di celle assemblate in uno stack, la regione di membrana più esposta al rischio di disidratazione è quella immediatamente adiacente all'ingresso dei gas, e in particolare all'ingresso dell'aria cui si farà specifico riferimento nel seguito. Questa regione, infatti, è soggetta ad una rapida evaporazione dell'acqua formata dalla reazione fra l'aria stessa, i protoni che migrano attraverso la membrana e gli elettroni che fluiscono attraverso il circuito esterno. Se la velocità di evaporazione è più elevata di quella di formazione dell'acqua la membrana subisce una progressiva disidratazione che ostacola la migrazione dei protoni con una conseguente caduta della conducibilità e delle prestazioni. E' da notare che se la situazione di disidratazione o scarsa idratazione persiste nel tempo la struttura del polimero è soggetta a un lento processo di riorganizzazione strutturale che rende irreversibile la perdita di conducibilità. Inoltre in condizioni di profonda disidratazione le caratteristiche meccaniche della membrana e in particolare la riserva plastica decadono bruscamente con un aumento intollerabile della probabilità di danneggiamento sotto forma di porosità e microfratture localizzate soprattutto nelle zone di maggiore sollecitazione meccanica, come ad esempio i bordi ed eventuali irregolarità della superficie degli elettrodi.

Per prevenire questi problemi la tecnologia nota è sostanzialmente diretta o ad



assicurare la preumidificazione dell'aria di alimentazione contenente all'origine la sola umidità ambientale (nel seguito definita come aria secca), che però non essendo completa per i motivi visti precedentemente attenua i rischi di disidratazione ma non li elimina, e/o a impiegare elettrodi che nella regione di entrata dei gas sono dotati di una minore porosità in grado di ostacolare la diffusione dell'acqua di reazione conservando meglio l'idratazione delle membrane, ma a prezzo di una caduta delle prestazioni e di complicazioni non trascurabili in fase di produzione. Nelle regioni centrale e terminale lato uscita dell'aria esausta il progredire della reazione determina la formazione di quantità crescenti di acqua che una volta saturata l'aria si separano sotto forma di fase liquida: in queste regioni, evidentemente, l'idratazione della membrana è massima, ma la presenza di gocce di acqua comporta difficoltà di distribuzione dell'aria quando i distributori interni sono costituiti da elementi planari con la superficie provvista di una molteplicità di scanalature alimentate in parallelo dall'aria. La presenza di gocce d'acqua bloccate all'interno di alcune scanalature di fatto impedisce il passaggio dell'aria e pertanto le corrispondenti porzioni di elettrodo sono inattivate con una caduta delle prestazioni complessive della cella. Il problema è attenuato adottando sezioni di passaggio delle scanalature tali da produrre una caduta di pressione sufficiente a rimuovere completamente le gocce. Questa soluzione, che comporta un maggiore consumo di energia per la necessaria pressurizzazione dell'aria, perde efficacia alle basse portate di aria corrispondenti alle condizioni di ridotta o nulla erogazione elettrica. L'espulsione completa dell'acqua liquida dalla cella è inoltre difficoltosa e obbliga invariabilmente ad alimentare l'aria nella parte superiore della cella in modo da accoppiare l'effetto della forza di gravità a quello di trascinamento esercitato



dall'aria esausta in uscita dalla parte inferiore.

Gli inventori, sulla base di un'ampia sperimentazione, hanno sorprendentemente trovato che è possibile far funzionare stabilmente una cella a combustibile in un ampio campo di densità di corrente come richiesto dalle applicazioni pratiche, con tensioni corrispondenti a buoni rendimenti di conversione energetica e con eccessi stechiometrici uguali a quelli di normale uso nella tecnica nota anche a pressioni moderate, in particolare inferiori a 3 bar, e ancora più in particolare a pressioni prossime a quella atmosferica e senza preumidificazione dell'aria di alimentazione. Questo risultato di grande interesse pratico è reso possibile dall'adozione contemporanea sia di distributori interni di gas costituiti da elementi planari porosi, ad esempio materiali reticolati tridimensionali, materiali sinterizzati, reti sovrapposte come descritto in US 5,578,388 sia di alimentazione di aria secca nella parte inferiore della cella. Il materiale reticolato tridimensionale è rappresentato in figura 2: il materiale è ottenuto da una schiuma polimerica a celle aperte rinforzata con un rivestimento metallico, ad esempio nickel o lega nickel – cromo preferita per la maggiore resistenza alla corrosione, o con un rivestimento in resina contenente una carica conduttiva, ad esempio sotto forma di particelle di grafite. Regolando lo spessore del rivestimento e selezionando opportunamente i materiali costituenti è possibile ottenere un materiale reticolato con adatta resistenza a compressione e dotato di elasticità residua, come è richiesto per assicurare il migliore contatto elettrico fra piatti bipolari e elettrodi. Il distributore interno sotto forma di elemento planare poroso ha il vantaggio, rispetto al tipo costituito da un elemento planare scanalato, di accettare la presenza di gocce di acqua senza che si generino apprezzabili disuniformità nella distribuzione dei gas, in particolare dell'aria. Inoltre se il rapporto fra volume interno vuoto e volume

Mz

totale dell'elemento poroso è elevato, tipicamente superiore a 50%, la velocità di passaggio del gas e in particolare dell'aria è ridotta e pertanto è ugualmente ridotto l'effetto di trascinamento sulle gocce di acqua che sotto l'effetto della forza di gravità possono almeno parzialmente percolare verso la parte inferiore della cella dove facilitano il processo di umidificazione dell'aria secca alimentata e mantengono un'idratazione ottimale della membrana proprio nella regione di maggiore criticità. E' chiaro ai tecnici del campo che un simile effetto non sarebbe perseguibile con i distributori interni di tipo scanalato in quanto l'effetto contrastante fra trascinamento dovuto all'aria fluente verso l'alto nelle scanalature e la forza di gravità che agisce verso il basso aumenterebbe la popolazione di gocce di acqua presenti nelle scanalature con un aggravamento inaccettabile dei problemi di maldistribuzione dei gas, in particolare dell'aria. La figura 1 schematizza una sezione trasversale della cella a combustibile secondo l'invenzione, dove (15) indica la cella a combustibile, (16) il dispositivo di raffreddamento, (1) e (2) rispettivamente l'alimentazione dell'aria secca e lo scarico dell'aria esausta, (3) e (4) l'alimentazione e l'uscita dell'idrogeno puro o del gas contenente idrogeno, (5) e (6) l'ingresso e l'estrazione dell'acqua di raffreddamento, (7) i piatti bipolari in materiale conduttivo, ad esempio grafite o composti polimero – grafite o leghe metalliche come acciaio inossidabile, (8) i distributori interni dei gas della cella costituiti da elementi planari porosi, ad esempio prodotti con il materiale reticolato tridimensionale di figura 2, (9) il catodo, cioè l'elettrodo catalitico in contatto con l'aria, (10) l'anodo, cioè l'elettrodo catalitico in contatto con l'idrogeno o il gas contenente idrogeno, (11) la membrana a conduzione di protoni, (12) le guarnizioni perimetrali di tenuta fornite, come i piatti bipolari, di opportune forature adatte a formare per sovrapposizione i canali





longitudinali di passaggio per i gas e per l'acqua di raffreddamento (individuati dalle linee con croci), (13) i tiranti necessari per mantenere l'assieme dei vari componenti sotto compressione in modo da realizzare la tenuta periferica dei gas verso l'ambiente esterno e il contatto elettrico fra piatti bipolari, distributori e elettrodi, (14) un elemento poroso analogo agli elementi (8) adatto a garantire la uniforme distribuzione dell'acqua di raffreddamento e a stabilire la continuità elettrica fra catodo (9) della cella e contatto esterno (+). I flussi dei due gas, ascendente quello dell'aria e discendente quello dell'idrogeno o del gas contenente idrogeno, sono rappresentati rispettivamente dalla linea continua e dalla linea a punti. Per migliore comprensione dell'invenzione la figura 3 schematizza una sezione con vista dall'alto di una cella a combustibile secondo la tecnica nota, dove gli stessi componenti della cella dell'invenzione sono indicati con gli stessi numeri di identificazione. Come si nota i distributori interni (8) sono costituiti da elementi planari privi di porosità e provvisti di scanalature verticali. Normalmente i distributori scanalati costituiscono un tutt'unico con i piatti bipolari. In figura 3 sono indicati anche i flussi di alimentazione e scarico dell'aria (1) e (2) e dell'idrogeno o del gas contenente idrogeno (3) e (4) che sono entrambi diretti dalla parte superiore verso la parte inferiore della cella (flussi noti nella tecnica come flussi equicorrente). La figura 4 mostra come una molteplicità di celle secondo l'invenzione possa essere assiemata a formare uno stack comprendente oltre alle varie celle anche due piastre terminali (17) e (18) la cui rigidità assicura una uniforme compressione di tutti i componenti in direzione longitudinale. Con linee con croci sono indicati i canali che assicurano il passaggio dei gas di alimentazione, dei gas scaricati e dell'acqua di raffreddamento e che sono formati dalla sovrapposizione delle apposite forature presenti sui piatti bipolari e sulle

guarnizioni perimetrali, come noto nella tecnica.

L'invenzione è stata provata con tre diversi tipi di realizzazione: con il primo tipo di realizzazione si intende trarre vantaggio dalla accennata capacità dell'elemento di tipo poroso di continuare a distribuire uniformemente i gas e in particolare l'aria anche in presenza di gocce di acqua bloccate nella struttura in condizioni di funzionamento che minimizzino però la probabilità di percolamento di acqua liquida verso la parte inferiore della cella. In questa situazione l'idratazione della membrana nella regione inferiore dove l'aria viene alimentata è assicurata grazie alla diffusione di acqua liquida dal comparto anodico attraverso la membrana. La formazione di acqua liquida nel comparto anodico è resa possibile dalla rilevante contrazione di portata che subisce l'idrogeno puro e in modo significativo anche il gas contenente idrogeno: questa contrazione determina la sovrasaturazione del vapore d'acqua con cui l'idrogeno si è arricchito nel transito attraverso la cella o che era già presente nel gas contenente idrogeno alimentato. Ne consegue che nella parte inferiore della cella si separa acqua liquida che riesce a mantenere idratata la membrana anche quando sul lato opposto è iniettata aria secca. Tuttavia, poiché la quantità di acqua che condensa sul lato anodico è relativamente modesta, è necessario che la portata volumetrica dell'aria sia limitata, in particolare nelle condizioni di massima erogazione elettrica quando la quantità di aria richiesta per il regolare funzionamento è certamente notevole. Affinché questa condizione sia osservata è necessario che la pressione dell'aria in corrispondenza della regione di entrata nella cella sia superiore a quella atmosferica, ma inferiore a 3 bar, tipicamente inferiore a 2.5 bar, per limitare il consumo di energia nel compressore, come detto precedentemente. La portata volumetrica ridotta, se da un lato è favorevole per il mantenimento dell'idratazione

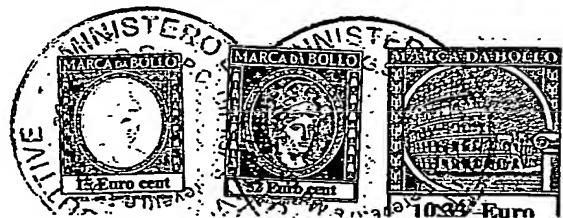
MM

nella regione critica della membrana, risulta però controproducente in quanto si raggiunge rapidamente la saturazione con vapore d'acqua. Pertanto, già in parte nella regione centrale e soprattutto nella regione in prossimità dello scarico dell'aria esausta si formano quantità rilevanti di acqua in fase liquida che possono influenzare negativamente il comportamento anche di un componente tollerante come è l'elemento planare poroso. Questo problema è risolvibile selezionando un elemento planare con porosità tale da produrre una diminuzione di pressione nell'aria in attraversamento. La riduzione di pressione comporta l'aumento della portata volumetrica dell'aria con una conseguente aumentata capacità di vaporizzare l'acqua liquida. La capacità di vaporizzare l'acqua in fase liquida può essere ulteriormente influenzata attraverso la temperatura dell'aria esausta, a sua volta funzione della temperatura dell'acqua di raffreddamento. La figura 5 mostra le tensioni di uno stack di 15 celle sottoposto ad un ciclo severo di erogazione elettrica da 2000 A/m² a 10000 A/m². Nella figura 6 è rappresentato l'andamento nel tempo della tensione a 2000 A/m². Le celle dello stack comprendevano piatti bipolari in acciaio inossidabile di tipo AISI 316L, distributori interni di gas di tipo reticolato tridimensionale in lega nickel – cromo, elettrodi ELAT[®] forniti da De Nora North America, E-Tek Division, USA, membrane Nafion[®] N1135 fornite da DuPont, USA. Le condizioni di funzionamento erano: aria secca alimentata nella parte inferiore delle celle a 1.5 bar a 25-50°C, aria esausta scaricata dalla parte superiore delle celle a pressione circa atmosferica (variazione di pressione nell'attraversamento dell'elemento planare poroso : 0,5 bar circa), eccesso stechiometrico di aria pari a 1.7-2.4, idrogeno alimentato nella parte superiore delle celle a 1.3 bar, eccesso stechiometrico di idrogeno pari a 1.1-1.2, temperatura di funzionamento 65-75°C, temperatura di iniezione e di estrazione

Mh

dell'acqua di raffreddamento rispettivamente 62°C e 74°C. Come si nota dal grafico della figura 6 il funzionamento dello stack risulta estremamente stabile nonostante l'alimentazione con aria secca e le condizioni assai severe di esercizio. A scopo di confronto è stato fatto funzionare uno stack del tutto identico a quello di figura 5 e 6 con le stesse condizioni operative, l'unica differenza essendo rappresentata dall'alimentazione dell'aria secca effettuata sulla parte superiore delle celle: si è notato un progressivo decadimento delle prestazioni con una brusca caduta della tensione di alcune celle a valori prossimi a quelli di inversione distruttiva dopo circa 350 ore di esercizio. Ugualmente a scopo di confronto è stato esercito uno stack analogo a quello di figura 5 e 6 con la differenza data dal tipo di distributore interno che era costituito da elementi planari scanalati del tipo schematizzato in figura 3. Non si è notato il collasso delle tensioni verificatosi con l'alimentazione di aria secca nella parte superiore delle celle, tuttavia i valori di tensione sono risultati mediamente inferiori di circa 0.1 volt per cella rispetto a quelli delle figure 5 e 6 e fortemente instabili con oscillazioni anche di 0.2 volt per cella, a chiara dimostrazione di disuniformità variabile nel tempo della distribuzione dell'aria, causata con ogni probabilità da presenza di gocce di acqua liquida intrappolate periodicamente nelle scanalature dei distributori interni.

La variazione di pressione che accompagna l'attraversamento del distributore interno poroso da parte dell'aria e che permette, come visto di mantenere sotto controllo la formazione di acqua liquida all'interno della cella comporta una maggiore sollecitazione meccanica sulla membrana in particolare lungo il perimetro: per questa ragione è necessario che la membrana sia completamente supportata lungo la periferia e che in questa zona delicata siano assenti asperità o



altri tipi di irregolarità.

Il secondo tipo di realizzazione dell'invenzione risolve questo problema assicurando una distribuzione di pressione pressoché uniforme sulla membrana con inoltre differenziali di pressione catodo-anodo modesti. A questo scopo il distributore interno poroso è caratterizzato da elevato rapporto fra volume vuoto e volume totale, ad esempio superiore al 50%, e preferibilmente superiore al 70%: conseguentemente, la variazione di pressione cui è sottoposta l'aria nell'attraversamento del distributore è estremamente ridotta, indicativamente minore di 0.2 bar, preferibilmente minore di 0.1 bar. In queste condizioni, operando a pressione particolarmente moderata, tipicamente al di sotto di 2 bar e in particolare a pressione circa atmosferica, la portata volumetrica dell'aria, come accennato precedentemente, è elevata ed è in grado di provocare la disidratazione della membrana nella regione di alimentazione dove l'acqua disponibile è solo quella che diffonde attraverso la membrana dal comparto anodico. Il problema può essere tenuto sotto controllo fissando la temperatura dell'aria esausta marginalmente al di sotto del punto di rugiada che è funzione del rapporto moli di acqua formata per reazione/moli totali scaricate di aria esausta e di vapore attraverso la regolazione della temperatura dell'acqua di raffreddamento: in questo modo una certa frazione dell'acqua formata per reazione condensa e percola attraverso il distributore poroso verso la parte inferiore della cella, dove mantiene idratata la membrana. Allo scopo di verificare l'efficacia del processo lo stack secondo l'invenzione è stato fatto funzionare con le regolazioni utilizzate per ottenere i dati delle figure 5 e 6 con la differenza dei distributori costituiti da materiale reticolato tridimensionale in lega cromo-nickel con rapporto volume vuoto/volume totale uguale a 75%, della pressione di alimentazione di 1.2 bar e



della temperatura di uscita dell'aria esausta mantenuta intorno a 60-65°C. I risultati ottenuti sono stati del tutto soddisfacenti con una sostanziale stabilità di tensione dello stack anche dopo 560 ore di funzionamento con tensioni del tutto analoghe a quelle indicate nelle figure 5 e 6. Il funzionamento descritto richiede una certa strumentazione di controllo della temperatura di uscita dell'aria esausta e della temperatura dell'acqua di raffreddamento.

Il terzo tipo di realizzazione dell'invenzione assicura l'idratazione della membrana nella regione critica inferiore in condizioni di alimentazione di aria secca a pressione moderata, inferiore a 3 bar, preferibilmente inferiore a 2.5 bar e ancora più preferibilmente a pressione circa atmosferica tramite l'iniezione diretta di acqua come schematizzato nella figura 7: il piatto bipolare (19) prospiciente il catodo (9) è stato dotato di fori calibrati (20) attraverso i quali l'acqua alimentata in (16) viene iniettata nel comparto catodico (linea tratteggiata) in prossimità dell'alimentazione di aria secca. Poiché l'acqua iniettata, oltre che provvedere a mantenere idratata la membrana, evapora per umidificare l'aria, essa garantisce anche un efficace raffreddamento rendendo non più necessaria la circolazione di acqua di raffreddamento attraverso (16). La portata di acqua iniettata viene stabilita in modo semplice mediante una pompa esterna a regime variabile di rotazione (non raffigurata in figura 7). La temperatura di uscita dell'aria esausta non richiede particolare regolazione e può senz'altro risultare superiore al valore del punto di rugiada come sopra definito. Lo stack dell'invenzione, costituito da 15 celle modificate come indicato per adattarle all'iniezione dell'acqua di umidificazione, è stato fatto funzionare nelle condizioni di erogazione elettrica usata per ottenere i dati delle figure 5 e 6, con stabilità di tensione molto soddisfacente e valori di tensione migliori, sia pure marginalmente, di quelli

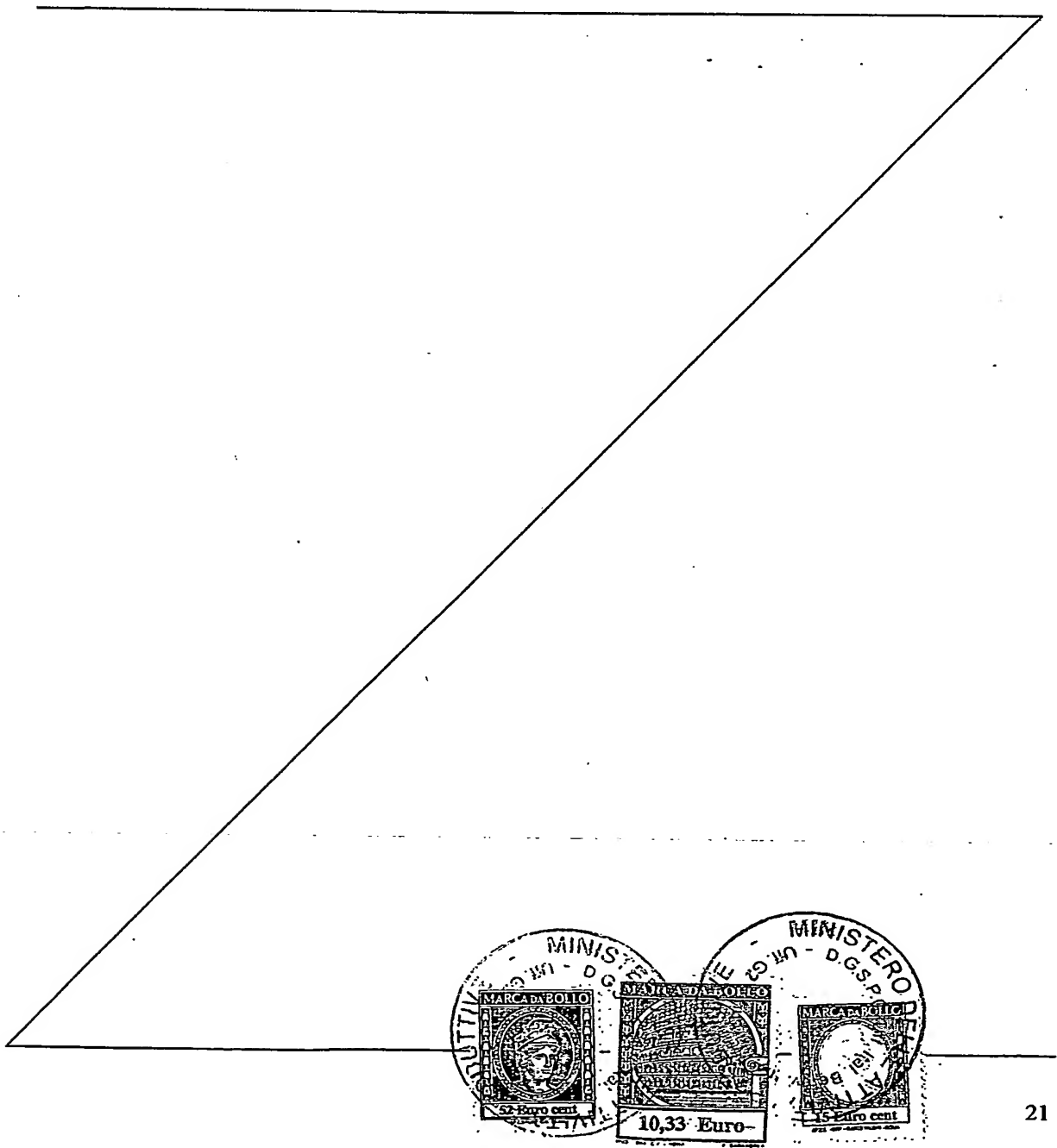


raccolti nelle figure 5 e 6. Si può supporre, senza con questo introdurre limitazioni all'invenzione, che l'efficacia dell'acqua iniettata sia dovuta alla formazione di un piccolo livello di fase liquida nella parte inferiore delle celle. Questo livello idrata pienamente le membrane e umidifica rapidamente l'aria che è forzata a gorgogliare attraverso di esso. La portata dell'acqua viene regolata in funzione dell'erogazione elettrica agendo sul regime di rotazione della pompa di iniezione in modo da raggiungere una condizione di equilibrio fra quantità iniettata e quantità asportata sotto forma di acqua vaporizzata e sotto forma di acqua trascinata come fase nebulizzata.

Una alternativa di funzionamento di questo terzo tipo di realizzazione dell'invenzione è caratterizzata da notevole semplificazione nelle regolazioni e prevede che la cella a combustibile o lo stack, in caso di molteplicità di celle, siano provvisti di alimentazione di aria e di iniezione di acqua fissate al valore necessario nelle condizioni di massima erogazione elettrica nominale: pertanto gli eccessi di aria e acqua sono tanto maggiori quanto minore è l'erogazione elettrica. Nel caso della tecnologia corrente una situazione di questo tipo condurrebbe rapidamente ad un essiccamento della membrana con crollo delle prestazioni, mentre nel caso dell'invenzione l'effetto disidratante delle elevate portate di aria secca è efficacemente controbattuto dall'iniezione di acqua anche nella regione critica di ingresso dell'aria e anche in condizioni di formazione ridotta o nulla di acqua di reazione come accade alle basse o nulle erogazioni elettriche. Certamente questo tipo di esercizio comporta un maggiore consumo medio di energia per l'alimentazione dell'aria, consumo tuttavia che si mantiene entro limiti senz'altro accettabili in considerazione della pressione richiesta per l'aria di alimentazione che può essere particolarmente modesta, tipicamente 1.2 bar, e

mm

preferibilmente 1.1 bar: ad esempio, nel caso di uno stack da 5 kW di potenza elettrica la portata dell'aria secca con un eccesso stechiometrico di 2 risulta essere di circa 16 m³/ora, cui corrisponde una potenza indicativa di solo 0.25 kW richiesta per portare la pressione a 1.2 bar. Lo stack dell'invenzione, esercito come appena indicato, ha mostrato ottime prestazioni, con una semplicità di sistema e quindi con una affidabilità di funzionamento finora impensabili.





RIVENDICAZIONI

1. Cella a combustibile a membrana delimitata da piatti bipolari comprendente un comparto catodico ed un comparto anodico, detto comparto catodico comprendente dispositivi per l'alimentazione di aria dal basso verso l'alto, detto comparto anodico comprendente dispositivi di alimentazione di un combustibile contenente idrogeno dall'alto verso il basso, almeno uno di detti comparti catodico e anodico comprendente un distributore di flusso costituito da materiale poroso.
2. La cella della rivendicazione 1 ove detto almeno un comparto comprendente un distributore di flusso poroso è il comparto catodico.
3. La cella della rivendicazione 1 o 2 ove detto materiale poroso è scelto dal gruppo dei materiali reticolati tridimensionali, dei materiali sinterizzati, delle reti sovrapposte, delle lamiere espanse sovrapposte.
4. La cella di una qualsiasi delle rivendicazioni precedenti ove detto materiale poroso ha porosità dimensionata per generare una variazione di pressione del flusso gassoso non superiore a 0.5 bar.
5. La cella di una qualsiasi delle rivendicazioni da 1 a 3 caratterizzata ove detto materiale poroso ha porosità dimensionata per generare una variazione di pressione del flusso gassoso non superiore a 0.1 bar.
6. La cella di una qualsiasi delle rivendicazioni precedenti ove detto materiale poroso ha un rapporto volume vuoto/volume totale non inferiore a 50%.
7. La cella della rivendicazione 6 caratterizzata dal fatto che detto rapporto è uguale o superiore a 75%.
8. La cella di una qualsiasi delle rivendicazioni precedenti comprendente un dispositivo di estrazione del calore percorso da acqua liquida in comunicazione con detto comparto catodico mediante fori calibrati sul relativo piatto bipolare che

delimita la cella.

9. Stack di celle a combustibile comprendente una molteplicità di celle delle rivendicazioni precedenti.

10. Metodo di operazione della cella di una qualsiasi delle rivendicazioni da 1 a 8 o dello stack della rivendicazione 9 ove detto comparto catodico è alimentato con aria allo stato secco e a pressione inferiore a 3 bar.

11. Il metodo della rivendicazione 10 ove detta pressione è inferiore a 1.2 bar.

12. Il metodo della rivendicazione 10 o 11 ove la temperatura dell'aria scaricata dalla parte superiore di detto comparto catodico è minore o uguale al valore di rugiada definito dal rapporto moli di acqua formate per reazione/moli totali scaricate di aria e di vapore d'acqua.

13. Il metodo della rivendicazione 12 ove il controllo di detta temperatura dell'aria scaricata è ottenuto per regolazione della temperatura di un fluido di raffreddamento circolante nella cella.

14. Il metodo della rivendicazione 13 ove detto fluido di raffreddamento è acqua iniettata nella parte inferiore della cella in prossimità dell'alimentazione di aria.

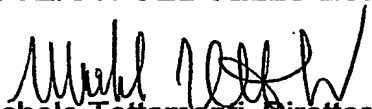
15. Il metodo della rivendicazione 14 ove detta acqua è iniettata nella parte inferiore della cella attraverso fori calibrati presenti sul piatto bipolare prospiciente detto comparto catodico.

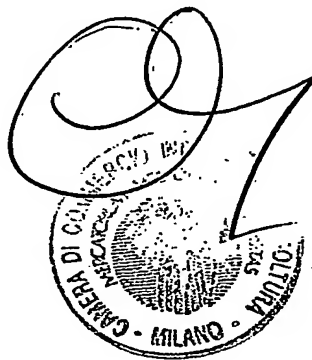
16. Il metodo della rivendicazione 15 ove detti fori calibrati sono in comunicazione con un dispositivo di estrazione del calore dal quale proviene detta acqua iniettata nella parte inferiore della cella.

17. Il metodo della rivendicazione 16 ove la portata dell'acqua che fluisce in detto dispositivo di estrazione è sostanzialmente uguale alla portata di detta acqua iniettata attraverso detti fori calibrati

18. Il metodo di una qualsiasi delle rivendicazioni da 14 a 17 ove la regolazione della portata di detta acqua iniettata è effettuata in funzione della erogazione di corrente elettrica.
19. Il metodo della rivendicazione 18 ove regolazione è realizzata agendo sul regime di funzionamento di una pompa di iniezione.
20. Il metodo delle rivendicazioni da 14 a 17 ove detta acqua iniettata e detta aria di alimentazione hanno portata costante corrispondente al valore richiesto per la massima erogazione elettrica nominale.
21. Cella a combustibile sostanzialmente come descritto con riferimento ai disegni allegati.

NUVERA FUEL CELLS EUROPE S.r.l.


Michele Tettamanti, Direttore Generale



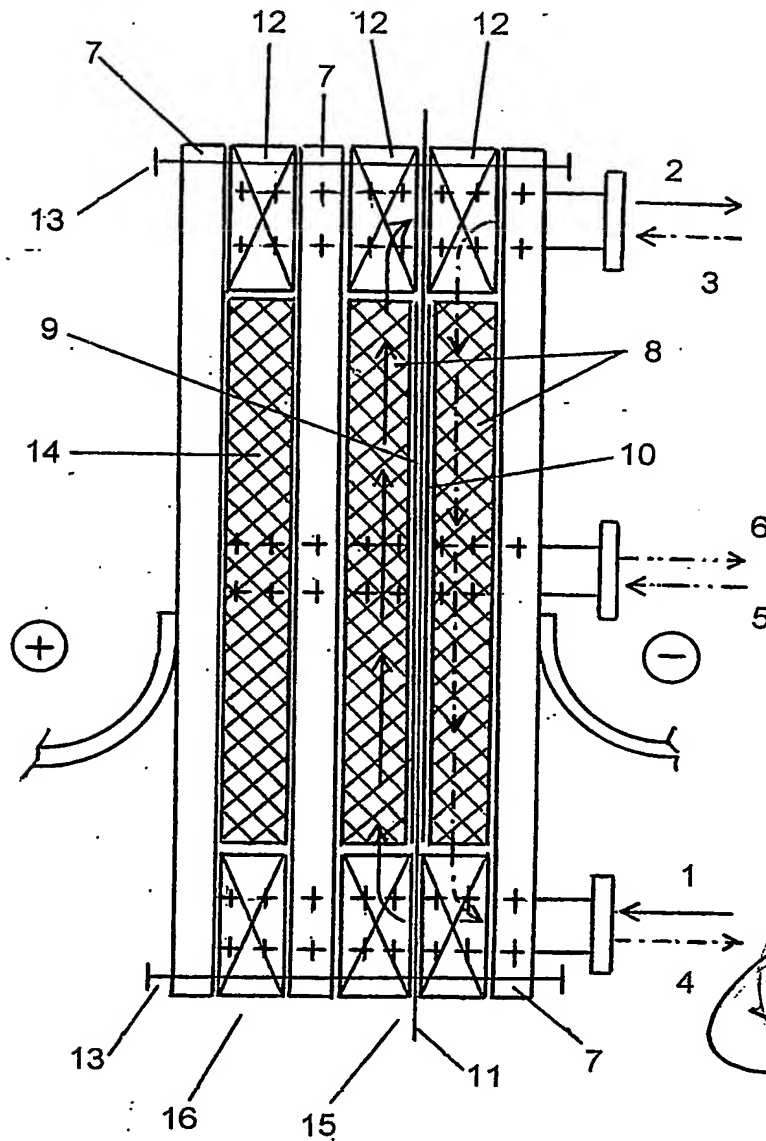
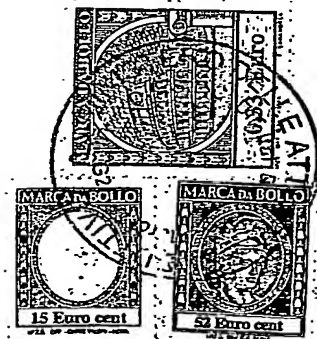


FIG. 1

MI 2003 A 0 0 2 5 3 1



NUVERA FUEL CELLS EUROPE S.r.l.

Michele Tettamanti
Michele Tettamanti, Direttore Generale

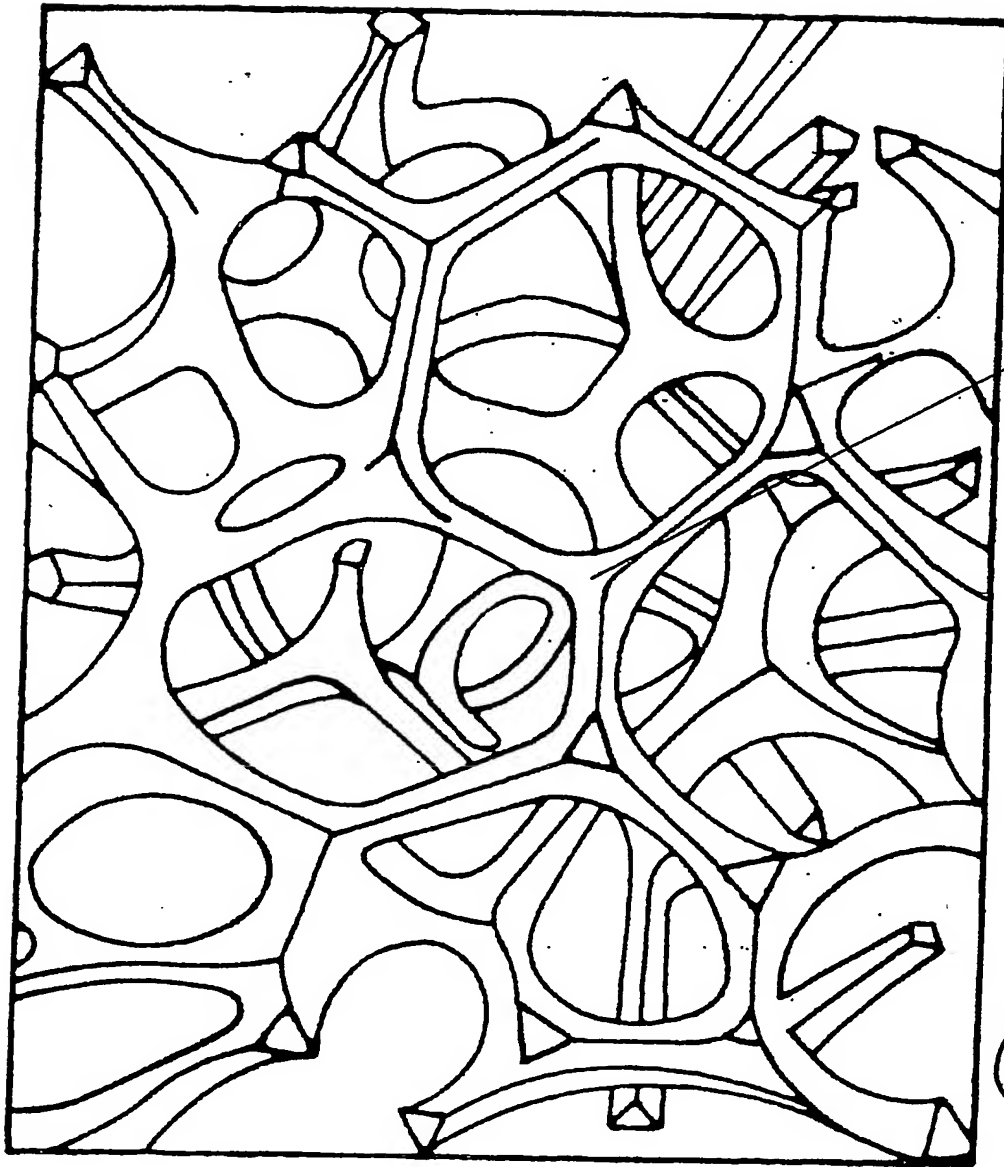


FIG. 2

MI 2003 A 0 0 2 5 3 1

NUVERA FUEL CELLS EUROPE S.r.l.

Michele Tettamanti, Direttore Generale

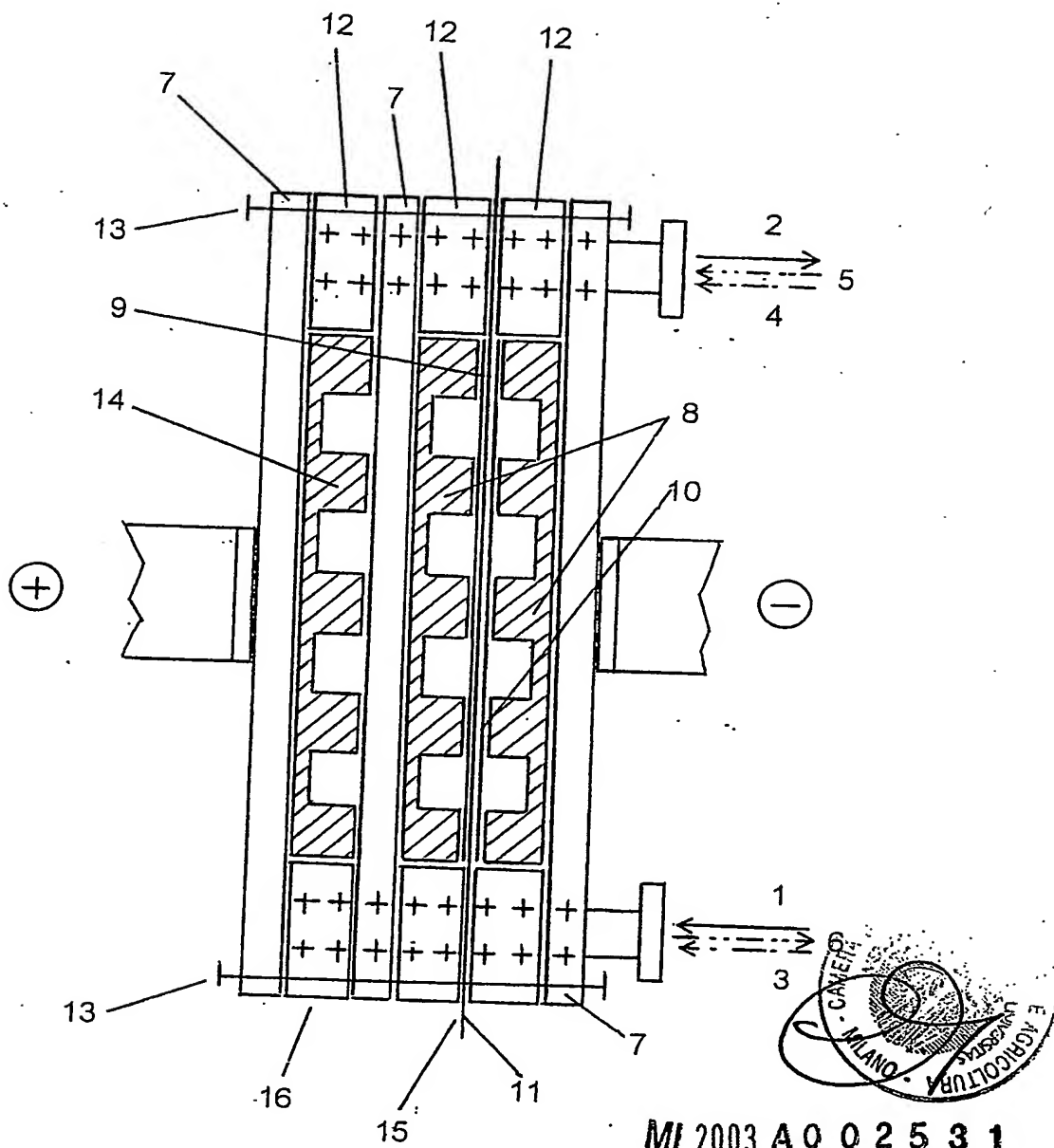


FIG. 3

NUVERA FUEL CELLS EUROPE S.r.l.

Michele Tettamanti, Direttore Generale

Michele Tettamanti

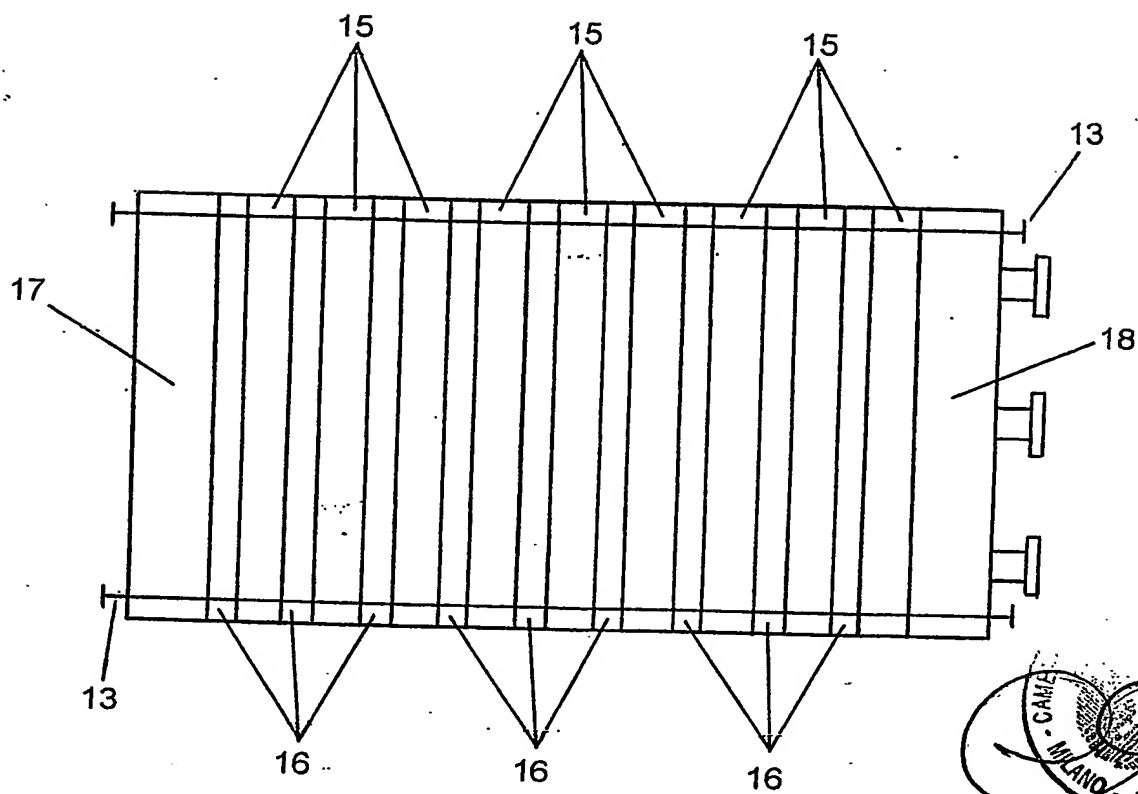
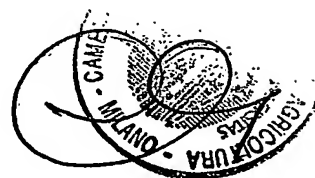


FIG. 4



MI 2003 A 0 0 2 5 3 1

NUVERA FUEL CELLS EUROPE S.r.l.

[Signature]
Michele Tettamanti, Direttore Generale

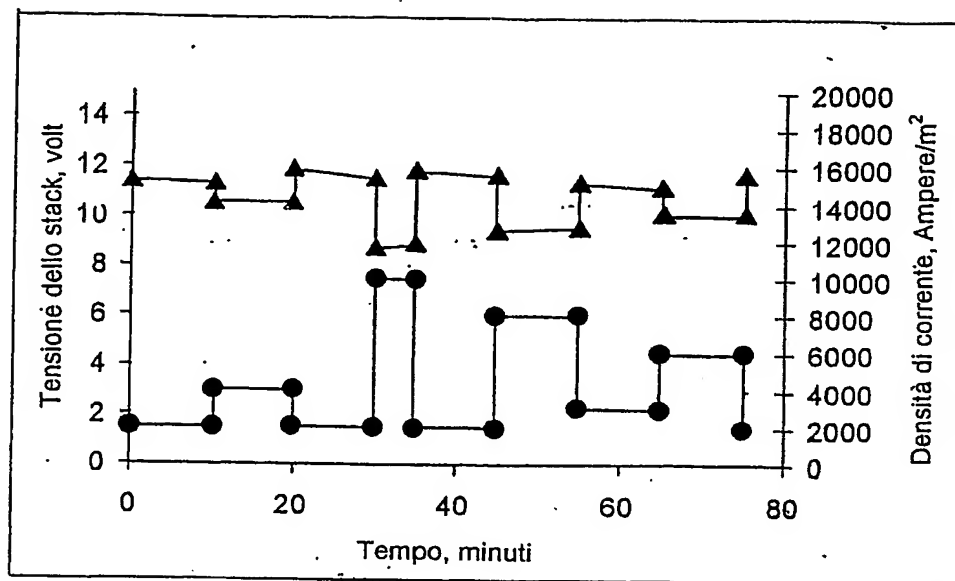


FIG. 5

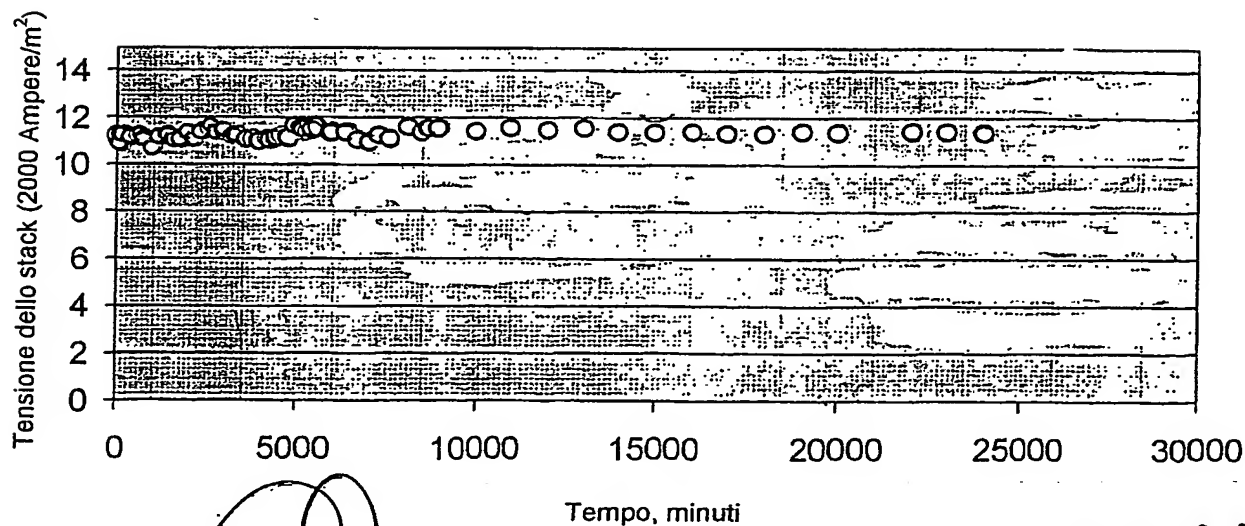
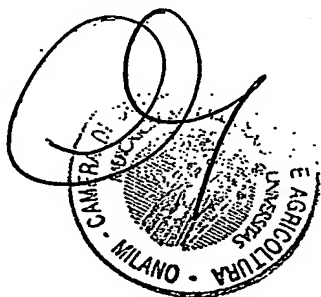


FIG. 6

MI 2003 A 0 0 2 5 3 1

NUVERA FUEL CELLS EUROPE S.r.l.

Michele Tettamanti, Direttore Generale



[Handwritten signature]

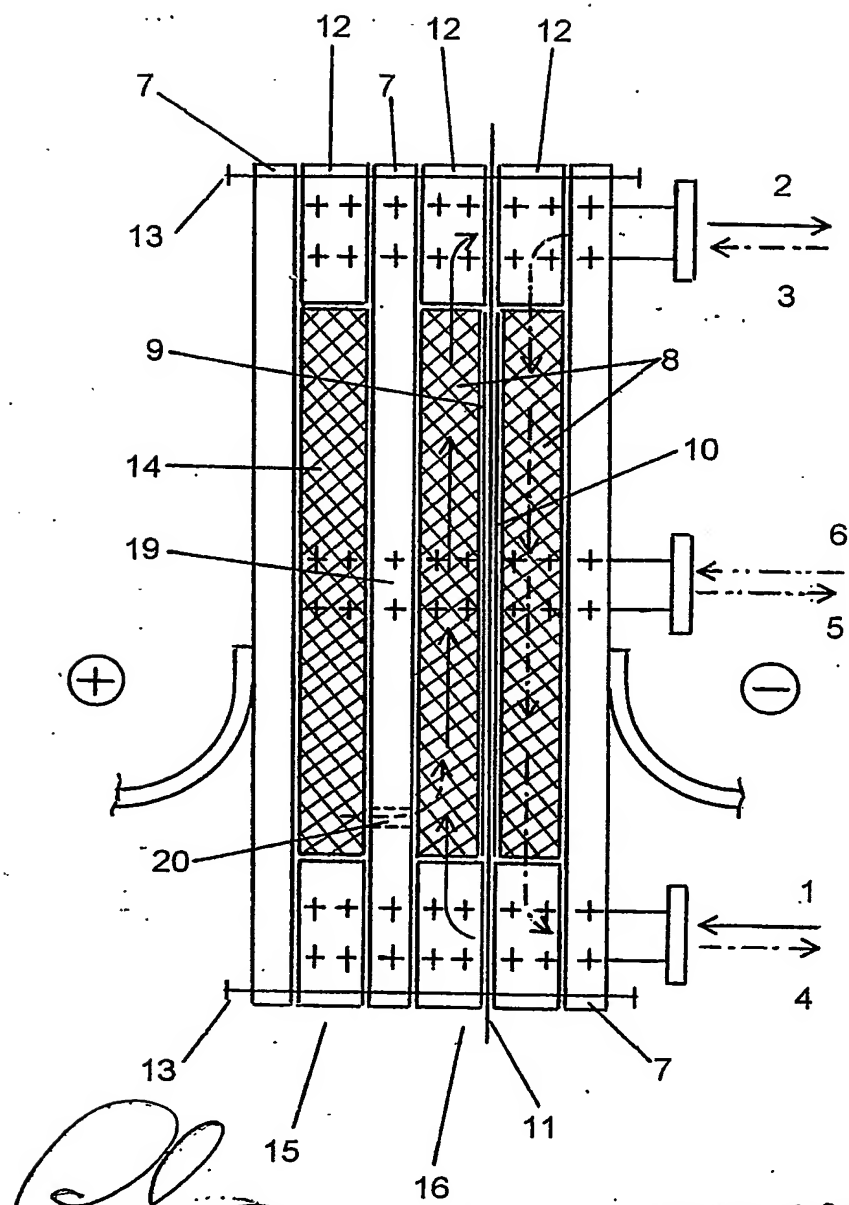
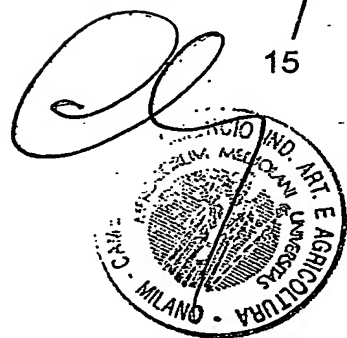


FIG. 7

MI 2003 A 0 0 2 5 3 1

NUVERA FUEL CELLS EUROPE S.r.l.

Michele Tettamanti, Direttore Generale



On. MINISTERO DELLE ATTIVITA' PRODUTTIVE

Direz. Gen. Sviluppo Produttivo e Competitività

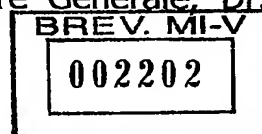
Ufficio Centrale Brevetti e Marchi - Roma



Oggetto : Domanda di brevetto N. MI2003A002531 del 19 dicembre 2003

Titolo : CELLA A COMBUSTIBILE A MEMBRANA ALIMENTATA IN
CONTROCORRENTE CON ARIA NON UMIDIFICATA

La ditta NUVERA FUEL CELLS EUROPE S.r.l - con sede legale in
Milano, Via Bistolfi 35 - nella persona del suo Direttore Generale, Dr.
Michele Tettamanti



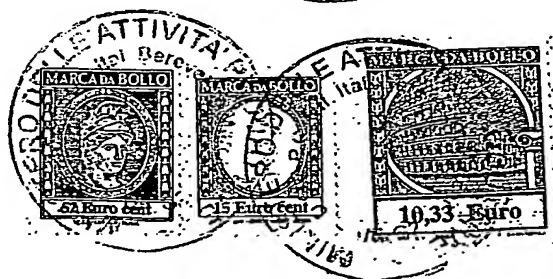
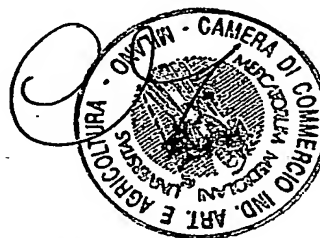
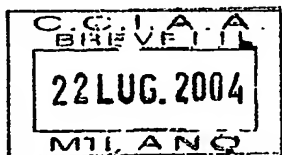
CHIEDE

di voler concedere per la domanda di brevetto in oggetto la modifica del verbale
di deposito dove deve essere aggiunto al punto E. "Inventori designati", dopo il
nominativo dei tre inventori: FAITA Giuseppe, TORO Antonino e MERLO Luca,
il nominativo del quarto inventore : XUE Zhi Yang. L'inserimento del nominativo
del quarto inventore è stato erroneamente tralasciato durante la compilazione
del verbale.

Milano, 15 luglio 2004

NUVERA FUEL CELLS EUROPE S.r.l.

Michele Tettamanti, Direttore Generale



This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record.

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☒ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.